

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-255586

(43) 公開日 平成11年(1999) 9月21日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

C 3 0 B 15/10

C 3 0 B 15/10

C 0 4 B 35/52

C 0 4 B 35/54

D

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願平10-61374

(22) 出願日 平成10年(1998) 3月12日

(71) 出願人 000002118

住友金属工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72) 発明者 城 毅

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

住友金属工業株式会社内

(72) 発明者 村上 秀俊

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

住友金属工業株式会社内

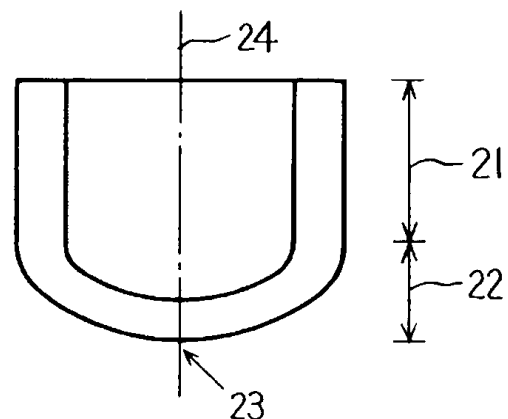
(74) 代理人 弁理士 深見 久郎

(54) 【発明の名称】 単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材るつぽおよびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 軽量で、強度が高く、製作が容易であり、しかも寿命が長い単結晶引き上げ用炭素材るつぽを提供する。

【解決手段】 炭素材るつぽ20は、その全体がフィラメントワインディング法によって形成された炭素繊維強化炭素材の組織を有する。るつぽの丸底部22を構成する材料組織は、フィラメントワインディング法により配置された炭素繊維の積層構造を有し、この積層構造には、丸底部22の中心軸24を通ることなく中心軸24から種々の距離で離れた軌道をそれぞれ通る炭素繊維が混在して配置されている。るつぽの高密度は1.0 g/cc以上であり、るつぽを構成する炭素繊維強化炭素材は、300 kg/cm<sup>2</sup>以上の曲げ強度を有する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 中心に極点を有する丸底部とそれに一体不可分につながる直胴部とを有する単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつばであって、

その全体が、フィラメントワインディング法によって形成された炭素繊維強化炭素材の組織を有し、

前記丸底部を構成する材料組織は、前記フィラメントワインディング法により配置された炭素繊維の積層構造を有し、

前記丸底部における前記炭素繊維の積層構造には、中心軸から種々の距離で離れた軌道をそれぞれ通る炭素繊維が混在しており、

前記つばを構成する炭素繊維強化炭素材は、 $1.0\text{ g/cc}$ 以上の高密度および $300\text{ kg/cm}^2$ 以上の曲げ強度を有することを特徴とする、単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつば。

【請求項2】 前記中心軸から種々の距離で離れた軌道をそれぞれ通る炭素繊維は、前記中心軸の周りに環状に配置された炭素繊維の積層構造を形成しており、

前記積層構造において、前記中心軸と前記環状に配置された炭素繊維との間の距離は、前記直胴部の半径またはその近傍まで、段階的に変化していることを特徴とする、請求項1に記載の単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつば。

【請求項3】 前記丸底部および／または前記丸底部と前記直胴部との境界部分に、炭素繊維クロスによる組織が存在することを特徴とする、請求項1または2に記載の単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつば。

【請求項4】 前記直胴部は、前記つばの水平方向にほぼ垂直な方向および／または前記水平方向に対して所定の角度で傾けられた方向に配置される炭素繊維と、前記水平方向にほぼ平行な方向に配置される炭素繊維とを含有することを特徴とする、請求項1～3のいずれか1項に記載の単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつば。

【請求項5】 中心に極点を有する丸底部とそれに一体不可分につながる直胴部とを有する単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつばをフィラメントワインディング法を用いて製造する方法において、結合材を付着させた炭素繊維をマンドレル上に巻き重ねていくに際し、前記丸底部を構成すべき炭素繊維の軌道を、底部極点またはその近傍から段階的に遠ざけていく工程を備えることを特徴とする、単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつばの製造方法。

【請求項6】 前記丸底部を構成すべき炭素繊維の軌道を底部極点またはその近傍から段階的に遠ざけていく工程において、前記軌道と前記底部極点との間の距離が大きくなるに従い、底部極点を通る中心軸からの距離が同じ軌道上に巻かれる炭素繊維を段階的に増やしていくことを特徴とする、請求項5に記載の製造方法。

【請求項7】 複数のフィラメントからなるストランドを前記炭素繊維として用い、

前記丸底部を構成すべき炭素繊維の軌道を底部極点またはその近傍から段階的に遠ざけていく工程において、前記軌道と前記底部極点との間の距離が大きくなるに従い、フィラメント数のより多いストランドを用いることを特徴とする、請求項5または6に記載の製造方法。

【請求項8】 得られる成形体の厚みを調整するため、前記丸底部を構成すべき部分および／または前記丸底部と前記直胴部との境界領域を構成すべき部分に炭素繊維クロスを貼付ける工程を備えることを特徴とする、請求項5～7のいずれか1項に記載の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、炭素繊維強化炭素材からなる単結晶引き上げ用つばおよびその製造方法に関し、特に、チョクラルスキー法により半導体材料等の単結晶を引き上げる装置において溶融材料を直接収容するつばを支持するために用いられるつばおよびその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】結晶成長法には種々の方法があるが、その1つとしてたとえばチョクラルスキー法により代表される引き上げ法が挙げられ、たとえば図1に示すような装置において行なわれる。

【0003】図1に示す結晶引き上げ装置において、チャンバ18内には、その中心部に原料融液を保持するための結晶引き上げ用つば10が配置される。結晶引き上げ用つば10は、側壁が円筒状の石英つば10aと、それを取囲む側壁が円筒状の炭素材つば10bから構成される。石英つば10aは、炭素材つば10b内に嵌合されている。結晶引き上げ用つば10の外側には、抵抗加熱式のヒータ12および黒鉛製の保温筒14が同心円状に配置されている。結晶引き上げ用つば10内には原料の溶解液13が収容される。溶解液13は、所定重量の原料をヒータ12により溶融することによって調製される。結晶引き上げ用つば10の中心軸上には、図中矢印で示す方向に所定速度で回転することのできる引き上げ棒16が設けられ、その先端には種結晶15が取付けられる。結晶引き上げ用つば10は、引き上げ棒16と同一の軸について同方向または逆方向に回転することのできるつば支持軸17により支持されている。調製された溶解液13の表面に種結晶15を接触させ、その成長に合わせて結晶を回転させかつ上方に引き上げていくことにより、単結晶11を成長させていくことができる。

【0004】上述したような装置においてシリコン等の半導体材料の単結晶を引き上げるとき、炭素材つばは、高温となって軟化した石英つばを外側から支持する。このような炭素材つばは、以下に述べるような種

々の要因により、ダメージを受けやすい。

【0005】単結晶引き上げ作業が完了し、るつぼが冷却されるとき、炭素材るつぼには主としてるつぼの周方向に引っ張り応力が作用する。これは、炭素材が内側のるつぼを構成する石英と比べてより大きな熱膨張係数を有することに起因する。この応力は、時に炭素材るつぼを破損させ、るつぼの寿命を短くする。また、単結晶引き上げ後に石英るつぼの底部に残留する半導体材料、たとえばシリコンは、冷却によって固化されるときに体積が膨張する。この膨張に伴って、時にるつぼの底部が破損するような応力が作用する。半導体ウェハの大径化が進むにつれ、用いるるつぼも大径化し、それに伴ってこれらの問題は一層顕著になってきた。

【0006】炭素材るつぼの周方向に作用する引っ張り応力を緩和する方法として、るつぼを縦方向に分割して用いる方法がある。この方法は、引っ張り応力の緩和に関しては一定の効果がある。しかし、るつぼ底部に残留する材料が固化するときに作用する膨張による応力の問題は、この方法によって十分に解決されるものではなかった。

【0007】また、炭素材るつぼを分割することによって新たな問題点が生じてきている。熔融半導体材料を収容した石英るつぼは、軟化して、半導体材料の重量やるつぼの自重により外側に膨れる。その結果、石英るつぼを支持している炭素材るつぼの各部材は外側に倒れようとする。その際、分割面に局所的な応力が作用する。これは、分割面の局所的な破損およびるつぼの寿命低下の原因となる。

【0008】さらに、炭素材るつぼの分割面には、熔融半導体の蒸気が付着しやすく、化合物が生成しやすい。たとえば熔融半導体がSiであれば、分割面においてSiC化合物が生成しやすい。この化合物と炭素材との熱膨張係数が異なるため、るつぼを冷却するときに化合物が生成した部分は剥離しやすい。

【0009】一方、石英るつぼの外側に設けられる炭素材るつぼの材質として、炭素繊維強化炭素材を用いることも提案されている（実公平3-43250号公報、実用新案登録第3012299号公報、特開平9-263482号公報参照）。炭素繊維強化炭素材は、繊維方向の強度が大きく、発生する応力に耐える強度を有し得る可能性がある。しかしながら、以下の理由で、これらの従来技術は、実用的な技術を開示するものではなく、以下に述べるような問題を有している。

【0010】実公平3-43250号公報は、円筒状の炭素繊維強化炭素材で構成された側壁部分と、黒鉛材で構成された底部の台座部分とを組合せた構造の単結晶引き上げ用るつぼを開示する。また、実用新案登録第3012299号公報は、るつぼの直胴部とそれから連続するR部とを炭素繊維強化炭素複合材料で構成し、それを黒鉛材からなる底部と組合せた構造のシリコン単結晶引

き上げ用るつぼを開示する。これらのるつぼはいずれも、少なくとも2種類の材質からなる部材を組合せるもので、その底部には炭素繊維強化炭素材を用いていない。これらのるつぼにおいて、黒鉛材で構成されるるつぼ底部は、上述した材料の固化時における膨張に起因する応力に対して十分な強度を有するものではない。また、複数の部材を組合せたるつぼは、上述したように分割面において熔融材料の蒸気との反応が起こりやすく、反応生成物の剥離が起こるといった問題を抱えている。

【0011】実公平3-43250号公報はまた、るつぼの全体を炭素繊維強化炭素材によって構成することを示唆する。同公報は、るつぼ形状のマンドレルにフルフルアルコール初期縮合物を含浸した炭素繊維の連続トウをヘリカル状に巻き付けて成形硬化し、マンドレルを除去した後、不活性雰囲気下で焼成してマトリックス結合材を炭化することによりるつぼを製造する方法を開示する。しかし、同公報は、具体的にどのようなワインディングを行えば実用的なるつぼが得られるかを何ら開示していない。実際のところ、このようなフィラメントワインディング法により、適当な強度の底部を得ることは容易なことではない。底部を具体的にどのように形成するのか、またそのように形成される底部がどれだけの強度を有するのか開示されていなければ、当業者は到底、適当な底部を有する炭素繊維強化炭素材のるつぼを製造することはできない。たとえば、上述した実用新案登録第3012299号公報は、るつぼ底部を炭素繊維強化炭素材で成形するのは非常に困難であるため、底部まで一体となったるつぼを作製する必要はないとし、底部とそれ以外の部分とを別々に準備し、それを組合せる方法を採用している。

【0012】特開平9-263482号公報もまた、るつぼ全体を炭素繊維強化炭素で構成することを開示する。同公報は、一例として、るつぼ内側を炭素繊維クロス積層体または炭素繊維フェルト積層体を用いた炭素繊維強化炭素材とし、るつぼ外側をフィラメントワインディング法により成形した炭素繊維強化炭素材とするるつぼを開示する。同公報はまたもう1つの例として、炭素繊維強化炭素材からなる複数の部材を組合せたるつぼを開示する。しかし、同公報もまた、具体的にどのような工程によってフィラメントワインディング法を行えば適当な強度を有するるつぼが得られるかについて何ら開示していない。上述したとおり、一般にフィラメントワインディング法によって適当な強度を有するるつぼ底部を構成することは困難であり、そのための具体的な条件が示されてなければ、当業者は望ましい強度を有する炭素繊維強化炭素材るつぼをフィラメントワインディング法によって製造することは非常に困難である。また、るつぼを複数の部材に分割すると、上述したような問題が生じる。

【0013】炭素繊維強化炭素材からなるるつぼは、る

つばの大型化に対応できるものとして期待されており、上述したように種々の提案がなされている。しかし、従来技術は、真に実用的なつばの構造およびその製造方法について有用な技術を提供するものではない。従来技術は、実用上、どれだけの強度が必要であり、そのような強度を得るため具体的にどのような構造および製造条件が望ましいかを何ら開示していない。高い強度、軽量性といった炭素繊維強化炭素材の特性を十分に発揮させた、真に実用的なつばおよびその製造方法の提案は、まだなされていないというのが実情である。

【0014】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、上述したるつば周方向に発生する引っ張り応力等、および材料固化時の膨張による応力に耐え得る強度または構造を有する炭素材のつばを提供することである。

【0015】本発明のさらなる目的は、全体が炭素繊維強化炭素材で構成されるるつばであって、十分な強度を有し、軽量でかつ容易に製造できるものを提供することである。

【0016】本発明のさらなる目的は、炭素繊維強化炭素材からなるるつばの実用的な構造および製造方法を提供することである。

【0017】

【課題を解決するための手段】本発明によるるつばは、中心に極点を有する丸底部とそれに一体不可分につながる直胴部とを有する単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつばであって、その全体がフィラメントワインディング法によって形成された炭素繊維強化炭素材の組織を有し、該丸底部を構成する材料組織は、フィラメントワインディング法により配置された炭素繊維の積層構造を有し、該丸底部における炭素繊維の積層構造には、中心軸から種々の距離で離れた軌道をそれぞれ通る炭素繊維が混在しており、かつるつばを構成する炭素繊維強化炭素材は、 $1.0\text{ g/cc}$ 以上の嵩密度および $300\text{ kg/cm}^2$ 以上の曲げ強度を有することを特徴としている。特に、るつばの丸底部を構成する炭素繊維強化炭素材が、 $1.0\text{ g/cc}$ 以上の嵩密度および $300\text{ kg/cm}^2$ 以上の曲げ強度を有することが好ましい。

【0018】本発明によるるつばにおいて、中心軸から種々の距離で離れた軌道をそれぞれ通る炭素繊維は、中心軸の周りに環状に配置された炭素繊維の積層構造を形成することができ、この積層構造において、中心軸と環状に配置された炭素繊維との間の距離は、直胴部の半径またはその近傍まで段階的に変化することができる。環状の形状は、本来限定されるものではないが、炭素繊維のフィラメントをワインディングした時のるつばの厚みの均一性や、表面の凹凸や、ワインディングのし易さを考慮すれば、8角形以上の多角形または円形が望ましい。ただし、ワインディングの回数が少なく、厚みの均一性等に関し考慮する必要がない場合は、3角形から7

角形までの多角形や楕円形であっても差支えない。

【0019】本発明によるるつばにおいて、丸底部および/または丸底部と直胴部との境界部分には、炭素繊維クロスを用いることが好ましい。

【0020】本発明によるるつばにおいて、直胴部は、るつばの水平方向にほぼ垂直な方向および/または水平方向に対して所定の角度で傾けられた方向に配置される炭素繊維と、水平方向にほぼ平行な方向に配置される炭素繊維とを含有することができる。

10 【0021】本発明によるるつばは、その全体が炭素繊維強化炭素材で構成された一体型のるつばであり、高い強度および軽量性の特徴を十分に発揮できるものである。本発明者は、上述したような構造、嵩密度および曲げ強度を有する炭素繊維強化炭素材でるつばを構成することによって、高強度および軽量性の特徴を十分に発揮することができ、実用に適したるつばを提供できることを見出している。

【0022】本発明者は、特に、炭素繊維フィラメントのワインディング方法を工夫することによって、適当な強度を有するるつば底部を構成できることを見出した。すなわち、本発明による製造方法は、中心に極点を有する丸底部とそれに一体不可分につながる直胴部とを有する単結晶引き上げ用炭素繊維強化炭素材のつばをフィラメントワインディング法を用いて製造する方法において、結合材を付着させた炭素繊維をマンドレル上に巻き重ねていくに際し、丸底部を構成すべき炭素繊維の軌道を、底部極点またはその近傍から段階的に遠ざけていく工程を備えることを特徴とする。

30 【0023】本発明による製造方法では、丸底部を構成すべき炭素繊維の軌道を底部極点またはその近傍から段階的に遠ざけていく工程において、該軌道と該底部極点との間の距離が大きくなるに従い、底部極点を通る中心軸からの距離が同じ軌道上に巻かれる炭素繊維を段階的に増やしていくことが好ましい。

【0024】また本発明による製造方法では、複数のフィラメントからなるストランドを炭素繊維として用い、丸底部を構成すべき炭素繊維の軌道を底部極点またはその近傍から段階的に遠ざけていく工程において、該軌道と該底部極点との間の距離が大きくなるに従い、フィラメント数のより多いストランドを用いることが好ましい。

【0025】さらに本発明による製造方法において、得られる成形体の厚みを調整するため、丸底部を構成すべき部分および/または丸底部と直胴部との境界領域を構成すべき部分に炭素繊維クロスを貼付ける工程を用いることができる。

【0026】

【発明の実施の形態】本発明によるるつばの各部分は、次のように定義することができる。図2を参照して、るつば20において、直胴部21は、るつば20の上端を

含み、ほぼ円筒状の形状をなしている部分である。丸底部22は、直胴部21に一体不可分につながり、直胴部21の一端における開口を塞ぐものである。丸底部22の表面は概ね球面状の曲面をなしている。丸底部22における極点23は、このような曲面とるつぼの中心軸24との交点を指し、球面状の曲面の頂点である。本発明によるるつぼ20は、連続する材料によって直胴部21および丸底部22が構成される。

【0027】一般に、炭素繊維強化炭素材からなるるつぼを製造する方法には、主に以下の2つの方法がある。

【0028】(1) フィラメントワインディング法  
通常炭素繊維フィラメントを束ねたストランドを熱硬化性樹脂、溶剤等からなる低粘度の結合材に浸漬した後、結合材の付着したストランドをるつぼ形状を有するマンドレルに巻き付けて必要なるつぼ形状に成形する。その後、100～300℃の温度で熱硬化を行ない、マンドレルを除去した後、得られる成形体をN<sub>2</sub>ガス等の不活性ガス中で約1000℃の温度で炭素化する。炭素化の後、必要に応じてフェノール樹脂、タールピッチ等を含浸させ、1500℃以上の温度で加熱して黒鉛化を行なう。黒鉛化工程により得られたるつぼを、通常1500℃から2500℃の温度に加熱して、高純度化処理を施し、炭素繊維強化炭素材からなるるつぼを得る。

【0029】(2) ハンドレイアップ法  
炭素繊維クロスをるつぼ型に貼付けて成形体を作製した後、フィラメントワインディング法と同様に熱硬化、炭素化、黒鉛化および高純度化処理を施して炭素繊維強化炭素材からなるるつぼを得る。

【0030】一般に、フィラメントワインディング法では炭素繊維の方向を制御することによってるつぼの強度を制御しやすく、またハンドレイアップ法は炭素繊維クロスの価格が高く、製造コストを高くするため、本発明では主としてフィラメントワインディング法を用いる。但し、本発明で、必要に応じてハンドレイアップ法を用いれば、成形体の厚みの制御が容易になり、より好ましい組織構造および強度を有するるつぼを得ることができる。

【0031】フィラメントワインディング法における炭素繊維の巻き方には、基本的にローラー巻き法とフープ巻き法がある。それらの代表的な巻き方をそれぞれ図3および図4に示す。図3は、極点を通る軌道をとったローラー巻きの様子を示している。図3(a)は炭素繊維が巻き重ねられている様子を底の方から模式的に示す底面図であり、図3(b)は巻き付けの様子を示す側面図である。このようなローラー巻きにおいて、炭素繊維31はいずれも底部の極点33を通過している。図4に示すフープ巻き法では、炭素繊維31は、マンドレルの中心軸に対してほぼ垂直な方向(るつぼの水平方向にはほぼ平行な方向)、すなわち横方向に巻かれる。

【0032】さて、図3に示すようなローラー巻きで

は、底部極点またはその近傍の厚みが大きくなり、そこから離れた部分すなわち低緯度の部分ではその厚みが小さくなる。すなわち、極点に近くなればなるほど(高緯度になればなるほど)炭素繊維の重なりは多くなり、それによる厚みは増していく。特に、極点およびその近傍では、重ねられた炭素繊維で盛り上がった形状ができる。このような盛り上がった部分にさらにワインディングを重ねていくと、ワインディングした繊維と繊維との間に隙間ができるようになり、黒鉛化を行なった段階でも空隙が残るようになる。このような局所的な厚みの増加および空隙の形成は、るつぼの形状および強度の点から好ましくない。また、盛り上がった部分にさらに炭素繊維をワインディングしようとする、繊維の滑りが生じてワインディングを続行することが困難になってくるという事態も生じる。

【0033】このようなローラー巻き法でワインディングを行なうと、極点あたりのるつぼの厚みが極端に増し、それから離れた部分(低緯度の部分)および直胴部の厚みは不十分になる。このような状態でさらにワインディングを重ねていくと、繊維の滑り、極端に盛り上がった形状、および空隙が発生してくる。したがって、極点を通るローラー巻き法のみによって適当な形状および強度を有するるつぼを得ることは困難である。

【0034】一方、図4に示すフープ巻きは、るつぼ直胴部のような円筒状のものに対して均一な厚みを付与するのに適している。しかし、るつぼ底部のような形状のものについては適していない。

【0035】そこで、本発明では、以下のような工程を用いて、適当な形状および高い強度を有するるつぼを製造する。まず、フィラメントワインディング法において、炭素繊維のワインディングを重ねるに際し、極点またはその近傍を通る軌道から低緯度を通る軌道へ炭素繊維を移行させてワインディングを行なっていく。すなわち、るつぼの丸底部を構成すべき炭素繊維の軌道を、極点またはその近傍から段階的に遠ざけていく。そのような巻き方の具体例を図5および図6に示す。いずれの図においても、(a)は底面図、(b)は側面図である。図5において、フィラメントワインディング法により巻かれた炭素繊維51は、極点を含む中心軸上の点を通ることなく巻き付けられている。るつぼの丸底部を構成すべく巻き付けられた炭素繊維51は、その極点側に直径d<sub>1</sub>の内接円ができるように円環状に配置される。したがって、炭素繊維51は、その底部において、中心軸から約d<sub>1</sub>/2だけ離れた軌道を通して巻かれる。このような巻き方を行なえば、極点部分が極端に厚くなるのを防ぐことができる。図5に示すように、中心軸から所定の距離だけ離れた軌道を通るワインディングを行なった後、ワインディング軌道の中心軸からの距離を変えて、ワインディングを行なっていく。たとえば図6に示すように、中心軸からの距離がより大きな軌道(低緯度を通

る軌道)へ移行してワインディングを行なう。図6において、炭素繊維51は、極点側に直径 $d_2$  ( $d_2 > d_1$ )の内接円ができるように円環状に配置される。炭素繊維51は、中心軸から約 $d_2/2$ 離れた軌道を通っている。このようにして高緯度を通る軌道から低緯度を通る軌道へ移行させていくことにより、すなわち底部を構成すべき炭素繊維の軌道を極点またはその近傍から遠ざけていくことにより、局所的に(特に極点部分において)るつぼの厚みが大きくなるのを防ぐことができる。底部を構成すべき炭素繊維の軌道と中心軸との距離は、製造すべきるつぼの大きさおよび形状に応じて種々の値に変えていくことができる。この距離を段階的に徐々に変えていきながらワインディングを多数重ねていけば、厚みのばらつきが少なくなるるつぼ底部を構成することができる。またそのようにして構成されたるるつぼ底部は、望ましい強度を有するようになる。なお、本発明の製造方法は、少なくとも上述したように炭素繊維の軌道を極点またはその近傍から段階的に遠ざけていく工程を備えるが、そのような工程の前および/または後において、極点またはその近傍を通るワインディングを行なってもよい。上述したようにるつぼ底部の構成において中心軸からの距離を変えて炭素繊維をワインディングすることにより、中心軸から種々の距離で離れた軌道をそれぞれ通る炭素繊維が混在した炭素繊維の積層構造を形成することができる。また、上述したように中心軸からの距離を段階的に変えながら底部を構成すべき炭素繊維の軌道を円環状に移動させていけば、炭素繊維は、中心軸の周りに環状に配置された積層構造を形成することができ、このような積層構造において、中心軸と環状に配置された炭素繊維との間の距離は、直胴部の半径またはその近傍まで段階的に変化させることができる。

【0036】また本発明の製造方法において、極点またはそれを通る軌道から低緯度を通る軌道へワインディングを重ねるに従って、すなわち底部を構成する炭素繊維の軌道を極点またはその近傍から遠ざけていくに従って、中心軸からの距離が同じ軌道上に巻かれる炭素繊維を段階的に増やしていくことが好ましい。たとえば、図5に示すように直径 $d_1$ の内接円ができるような配置の炭素繊維よりも、図6に示すように直径 $d_2$ の内接円ができるような配置の炭素繊維が多い方が好ましい。すなわち、るつぼの丸底部を構成するに際し、ワインディングされる炭素繊維と底部極点との間の距離が大きくなるに従い、極点からの距離が同じような配置となる炭素繊維の数を増やしていくことが好ましい。このような巻き方により、丸底部の厚みのばらつきをさらにコントロールすることができる。

【0037】さらに、本発明において、極点または極点近傍を通る軌道から低緯度を通る軌道へワインディングを移行させるに従って、フィラメント数の少ない炭素繊維ストラ

ンドへ移行させることが好ましい。たとえば、図5に示すようなワインディングに用いる炭素繊維のフィラメント数よりも、図6に示すワインディングに用いる炭素繊維のフィラメント数の方が多いたことが好ましい。すなわち、底部を構成する炭素繊維について、ワインディングの軌道と極点との間の距離が大きくなるに従い、フィラメント数のより多いストランドを用いることが好ましい。このようなワインディングによって、丸底部の厚みのばらつきをさらにコントロールすることができる。

【0038】また、本発明において、必要に応じて炭素繊維クロスを用いることが好ましい。炭素繊維クロスは、るつぼの厚みの調整を容易にする。炭素繊維クロスは、特に、丸底部および/または丸底部と直胴部との境界領域に用いることが好ましい。これらの部分は、他の部分よりも厚みの調整が困難であるからである。炭素繊維クロスの貼付けは、ワインディングの前、ワインディングの後およびワインディングの途中の少なくともいずれかの段階において適宜行なうことができる。丸底部における炭素繊維クロスの貼付けは、たとえば図7および図8に示すようにして行なうことができる。図7に示す工程では、ワインディングされた炭素繊維71上に適当な大きさおよび形状(たとえば直胴の直径よりも適当に小さな直径を有する円形状)の炭素繊維クロス72が貼付けられている。このような貼付けは、炭素繊維クロスに結合材を付着させて所定の部分に置くことにより容易に行なうことができる。さらに、貼付けた炭素繊維クロス上にワインディングを行なった後、図8に示すようにより大きな(たとえばより大きな直径を有する円形状)炭素繊維クロスを貼付けることができる。このような工程によって、丸底部の肉厚を確保し、厚みのばらつきをコントロールしていくことができる。このような工程により、丸底部において炭素繊維とクロスとが重ねられた積層組織を有する炭素繊維強化炭素材をもたすことができる。そのような組織を有する材料は、より高い強度を有することができる。

【0039】また図9に示すように、丸底部と直胴部との境界領域に適当な大きさおよび形状の炭素繊維クロスを貼付ることが好ましい。図9に示す工程では、所定の大きさを有する複数の炭素繊維クロス92が、直胴部と丸底部との境界領域においてるつぼを一周するように貼付けられている。このような貼付けは、ワインディングを中断して複数の炭素繊維クロスを一度に貼付けることによって行なうことができる。また、所定の枚数の炭素繊維クロスを一度に貼付ける代わりに、1枚または複数枚のクロスを貼付けながら、ワインディングを行なう工程を繰返していてもよい。また、直胴部と丸底部との間の領域には図10に示すような炭素繊維クロス102を貼付けてもよい。この炭素繊維クロスは、直胴部を一周できるような長さを有し、かつ直径の小くなった丸底部にうまく沿うように部分的に切れ込みが設けられて

いる。上述したように、丸底部および直胴部と丸底部との境界領域に炭素繊維クロスを貼付けることが好ましいが、必要に応じてるつぼ厚みを調整するためその他の部分に炭素繊維クロスを貼付けてもよい。

【0040】上述したボーラー巻きにおいて、炭素繊維が極点を通る場合、直胴部の炭素繊維はるつぼの水平方向と垂直である。一方、ボーラー巻きにおいて極点から所定の距離離れた軌道を通る炭素繊維は、るつぼの水平方向に対して所定の角度で傾いている。直胴部における炭素繊維は、これらボーラー巻きによる炭素繊維と上述したフープ巻きによる炭素繊維とが重ねられていることが好ましい。フープ巻きによる炭素繊維は、るつぼの水平方向に対して若干傾いた角度からほぼ平行な角度の間で巻かれる。直胴部のフープ巻きは、ボーラー巻きの前またはボーラー巻きの後のいずれにおいても行なうことができる。またボーラー巻きとフープ巻きを交互に行なってもよい。このようにフープ巻きおよびボーラー巻きの炭素繊維が混在する直胴部は、るつぼの水平方向にほぼ垂直な方向および／または該水平方向に対して所定の角度で傾けられた方向に配置される炭素繊維と、該水平方向にほぼ平行な方向に配置される炭素繊維とが積層された構造を有する。

【0041】本発明に用いられる炭素繊維の種類は、特に制限されるものではなく、PAN系、レーヨン系、ピッチ系のいずれの炭素繊維も用いることができる。フィラメントワインディング法で用いることのできる強度を考慮すれば、PAN系炭素繊維がより好ましい。炭素繊維の直径も特に限定されるものではないが、フィラメントワインディング時の繊維切れを防止することを考慮すれば、 $2\mu\text{m}\phi$ 以上のものが好ましい。用いられる炭素繊維ストランドのフィラメント数は、フィラメントワインディング時の繊維切れを防止する観点から、1000本/ストランド以上が好ましい。さらに極点およびその近傍の盛り上がり考慮すると、1000～20000本/ストランドの範囲のものが好ましい。

【0042】本発明に用いられる結合材には、特に限定されることなく、フェノール樹脂を含む熱硬化性樹脂、ピッチ等の有機バインダを用いることができる。

【0043】上述したような工程によって製造され、上述したような組織構造を有する本発明によるるつぼ材の嵩密度は、 $1.0\text{g}/\text{cc}$ 以上である。嵩密度が $1.0\text{g}/\text{cc}$ 未満では、るつぼを構成する材料において空隙が多くなり、特に表面に露出した空隙に、たとえばシリコン単結晶の引き上げを行なう場合、引き上げ中に溶融シリコンから発生する $\text{SiO}_2$ ガスが入り込む。このようなガスは、炭素材と反応して $\text{SiC}$ を生成させる。反応生成物と炭素材との間の熱膨張係数の差に起因して、反応生成物は炭素材から剥離し、るつぼの寿命を低下させる要因となる。嵩密度の上限は特に限定されるものではないが、炭素繊維の密度が通常約 $1.8\text{g}/\text{cc}$ 以下

であることを考えれば、一般に本発明のるつぼ材の嵩密度は $1.0$ 以上 $1.7\text{g}/\text{cc}$ 以下の範囲にある。

【0044】本発明によるるつぼを構成する炭素繊維強化炭素材の曲げ強度は、 $300\text{kg}/\text{cm}^2$ 以上である。このような曲げ強度は、通常材料を構成する主要な炭素繊維の方向に対して垂直な荷重を加えたときの強度で表わされる。より好ましい曲げ強度は $400\text{kg}/\text{cm}^2$ 以上である。るつぼを構成する材料の曲げ強度が $300\text{kg}/\text{cm}^2$ 未満であると、単結晶引き上げ後の冷却時に破損が生じる可能性が高くなり、より寿命の長いるつぼを得ることが困難になる。

【0045】このような強度および嵩密度を有する実用的な炭素材るつぼを提供するため、本発明は上述したような工程を用いる。底部極点またはその近傍を通る軌道から低緯度を通る軌道へ移行する工程において、その移行量は、同一軌道をワインディングする周回数やストランドを構成する炭素繊維フィラメントの数に応じて調節することができる。たとえば、ワインディングにおいて形成される成形体の表面の凹凸が $5\text{mm}$ 以下になるように、高緯度側から低緯度側へ軌道に移していくことが好ましい。成形体の厚みは、丸底部の緯度方向になるべく均等になることが好ましい。そのようなワインディングを行なって成形体の厚みが、特に低緯度の部分の厚みが所望する厚みを下回っている場合、炭素繊維クロスに適宜貼付けることによって厚みを調節することができる。上述したように、たとえば中心軸から所定の距離だけ離れた円環状の軌道でワインディングを行ない、中心軸からの距離を段階的に大きくしていくことができるが、このような距離は、たとえば0～直胴部直径の間で、形成するるつぼの大きさや形状に応じて、たとえば5段階～50段階の間で変化させることができる。このような距離の変更は、たとえば一定の長さだけ段階的に増加させていってもよいし、それ以外の対応で段階的に増加させていってもよい。

【0046】なお、炭素繊維のワインディングを重ねるにしたがって、低緯度を通る軌道から極点またはその近傍を通る軌道へ移行させる工程も、場合によっては用いてもよい。

【0047】また、底部極点またはその近傍を通る軌道から低緯度を通る軌道へ移行するに従い、極点からの距離が同じ軌道を炭素繊維が周回する回数を増加させながらワインディングを行なうことができる。ボーラー巻きを行なうと、概して極点に近い部分、すなわち高緯度の部分ほど炭素繊維ストランドが多く集まり、その結果、高緯度の部分の方が低緯度の部分よりも厚くなりやすい。高緯度の部分が所望する厚みになっても、低緯度の部分および直胴部周辺の部分の厚みが不足することがある。このような場合、低緯度におけるワインディングの周回数を高緯度のものよりも増加させることによってそのような厚みの不均一を解消することができる。ワイン

## 13

ディング周回数の増加は、たとえば得られる成形体表面の凹凸が5mmを超えないように行なうことが好ましい。周回数の増加量は、用いる炭素繊維のストランドの太さ、ストランドを構成するフィラメントの数等に応じて決定することができる。周回数を段階的に徐々に増加させることによって、高緯度の部分と低緯度の部分の肉厚がほぼ等しくなるようにすることができる。

【0048】さらに本発明において、底部極点またはその近傍を通る軌道から低緯度を通る軌道へ移行するに際し、フィラメント数の少ない炭素繊維ストランドからフィラメント数の多い炭素繊維ストランドへ切換えることができる。このような切換えによって、低緯度の部分において厚みが不足する傾向を抑制することができる。フィラメント数の増加量は、使用している炭素繊維ストランドの太さまたはフィラメント数、高緯度から低緯度への移行量、極点からの距離が同じ軌道を通る周回数等に応じて設定することができる。フィラメント数の増加量は、たとえば、得られる成形体表面の凹凸が5mm以下となるように設定することが好ましい。フィラメント数を徐々に段階的に増加させていくことによって、るつぽ厚みのばらつきをなくし、均等な厚みの丸底部を形成することができる。

【0049】以上に示す工程と炭素繊維クロスを貼付ける工程とを併用すれば、より厚みの調節が容易となり、所定の部分に必要な厚みをもたすことができる。特に、丸底部、および直胴部と丸底部との境界領域に炭素繊維クロスを貼付ける方法は現実的かつ有用な方法である。炭素繊維クロスには、特に制限されることなく、種々の織り方により作製された2-DクロスやUDクロスを用いることができる。特に、連続炭素繊維を直交交差織にした平織2-Dクロスが異方性が少ないため好ましい。クロスを構成する炭素繊維の種類は、特に限定されることなく、PAN系、レーヨン系、ピッチ系のいずれも用いることができる。強度の観点からは、PAN系炭素繊維からなるクロスがより好ましく用いられる。使用する炭素繊維クロスの厚みは、たとえば0.1mm～1.0mmとすることができる。

【0050】以上のような製造工程を用いることによって、表面の凹凸が小さく、内部および表面における空隙が少なく、比較的大きな嵩密度を有し、相対的に強度が高い炭素材るつぽを製造することができる。以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0051】

【実施例】原料 直径7 $\mu$ m、密度1.77g/ccのPAN系炭素繊維が予め3000本、6000本、12000本それぞれ束ねられた市販の3種類の炭素繊維を用いた。これらの炭素繊維を5本ずつ束ねて、フィラメント数がそれぞれ15000本、30000本および60000本である3種類のストランドを作製し、ワイ

## 14

ンディングに使用した。

【0052】炭素繊維クロスとして、PAN系炭素繊維を平織にした市販のものをを用いた。クロスにおける経糸および緯糸はともに6000本の炭素繊維フィラメントで構成されていた。

【0053】結合材として市販のフェノール樹脂を用いた。

〔一般工程〕PAN系炭素繊維をロービング装置にて5本に束ねたものをワインディングのための炭素繊維ストランドとした。ストランドを、フィラメントワインディング装置内の浸漬槽に導入し、室温においてフェノール樹脂をストランドに付着させた。るつぽ形状に対応したマンドレルに、フェノール樹脂を付着させたストランドをワインディングして所定の形状に成形した。途中必要に応じて炭素繊維クロスを貼付けた。得られた成形体を大気中で200℃において3時間保持し、フェノール樹脂を熱硬化させた。熱硬化後、マンドレルを外し、得られた成形体をN<sub>2</sub>ガス雰囲気中で1000℃において6時間保持し炭素化を行なった。炭素化した成形体をフェノール樹脂浴に浸漬させ、樹脂を含浸させた。上記炭素化およびフェノール樹脂含浸の工程を3回繰返した。最後の含浸工程の後、N<sub>2</sub>ガス雰囲気中で2000℃において6時間保持し、黒鉛化を行なった。次いで2000℃に6時間保持して高純度化処理を行なった。以上の一般工程により単結晶引き上げ用炭素材るつぽの素材を作製した。

【0054】〔材料の物理試験〕図11に示すような位置において、物理試験のための試料を採取した。試料110は、るつぽの丸底部から採取された。採取位置は、底部極点と直胴部との間であり、るつぽ厚み方向においてほぼ中心の位置であった。試料の軸方向は中心軸から直胴部に向かう方向（半径方向）であった。5mm×5mm×50mmのサイズの試験片を採取し、その嵩密度および曲げ強度を測定した。曲げ強度および嵩密度の測定は、試験片のサイズを上記とした以外はJIS R 7222高純度黒鉛素材の物理試験方法に準じた。すなわち、曲げ強度は、JIS B 7733（圧縮試験機）に規定する曲げ試験機を用いて測定した。嵩密度は、試験片を105～110℃の空気浴中で2時間保ち、これをデシケータ中で冷却して室温に達した後直ちに質量を測り、再び空気浴中に移し、1時間ごとに冷却して質量を測り、これを恒量に達するまで繰返し、その体積を求めた後、乾燥重量の値を求めた体積で除して嵩密度とした。

【0055】〔実施例1〕上述した一般工程において、次に示すようなワインディングおよび炭素繊維クロスの貼付けを行なって単結晶引き上げ用炭素材るつぽを作製した。

【0056】まず、直胴部についてフープ巻きでワインディングを行ない、適当な厚みとした後、図12に示す



ように、炭素繊維ストランドを16回ワインディングしてマンドレル底部を一周するようなワインディングを行なった。このとき、底部極点を中心となり、ワインディングされたストランドの内側に生じる内接円の直径は30mmであった。このワインディングが終了した後、50mm×50mmの炭素繊維クロスをその中心を直径30mmの内接円の中心にはばかせて貼付けた。貼付けは、クロスに結合材を付着させた後所定の部分に置くことによって行なった。

【0057】次いで、内側にできる内接円の直径が60mmとなるように、16回のワインディングで一周するワインディングを行なった。その後、80mm×80mmの炭素繊維を上記と同様に底部の中心に合せて貼付けた。さらに、図13に示すように、底部と直胴部との境界領域に250mm×120mmの炭素繊維クロスを貼付けた。貼付けは、マンドレルを一周するようにクロスを一様に並べて行なった。次に、ストランドの幅だけワインディングの軌道を底部の周方向に少しずらして同じく直径60mmの内接円ができるようなワインディングを行なった。このようなワインディングを行なえば、上下のストランド間で隙間がほとんどできない。同様に16回1周のワインディングを行なった後、底部の中心および底部と直胴部との境界領域に上記と同様のサイズの炭素繊維クロスを貼付けた。このようなワインディングの軌道を少しずらして16回1周するワインディングを行なった後、炭素繊維クロスを貼付ける工程を直胴部でのストランド間の隙間がなくなるまで繰返した。

【0058】以降同様に、内接円の直径を30mmずつ大きくしながら、すなわち内接円の直径を90mm、120mm、150mm…のように段階的に大きくしながら、同時に、底部に貼付ける炭素繊維クロスの一辺を30mmずつ大きくして、すなわち110mm×110mm、140mm×140mm、170mm×170mm…のように大きくして、各内接円の段階で、直胴部でのストランド間の隙間がなくなるまで上記と同様に16回1周のワインディングとクロス貼付けの工程を繰返した。なお、底部と直胴部との境界領域に貼付けるクロスの寸法は、終始250mm×120mmとした。このようにして、内接円の直径を大きくしながら、ワインディングとクロス貼付けとを繰返し、内接円の直径が直胴部の直径とほぼ同一の値になるまでワインディングの軌道を高緯度から低緯度に移行させながら作業を繰返していった。

【0059】ただし、上述したワインディングにおいて、さらに次のようにストランドのフィラメント数、ワインディングの周回数を変えていった。図14に示すAの領域、すなわち内接円が底部極点(緯度90度)から緯度45度の間にくるワインディングでは、フィラメント数が15000本の炭素繊維ストランドを用いた。また図14に示すBの領域すなわち内接円が緯度45度～

30度の間にくるワインディングでは、フィラメント数が30000本の炭素繊維ストランドを用いた。さらに、内接円が緯度45度～30度の間にくるワインディングでは、同一の内接円の段階で、炭素繊維ストランドが直胴部を隙間なく覆うまで炭素繊維の軌道を少しづつずらしながら16回1周のワインディングすることとクロスの貼付けとを繰返す工程を、さらにもう一度繰返した。すなわち、緯度90度～45度の間では1ラウンドであった工程が、緯度45度～30度の間では2ラウンド行なわれた。次いで、図14に示すC領域、すなわち内接円が緯度30度～0度の間にくるワインディングでは、フィラメント数が60000本のストランドを用いた。さらに、内接円の緯度が30度～0度の間にくるワインディングでは、同一内接円の段階で、ストランドが隙間なく直胴部を覆うまで16回1周のワインディングとクロスの貼付けを行なう工程を3ラウンド行なった。【0060】また、底部の肉厚が所定の値となったところで、直胴部の肉厚が不足している部分にフープ巻きにより炭素繊維のワインディングを行ない、全体を所定の肉厚とした。

【0061】以上の方法によってワインディングおよびクロスの貼付けを繰返し、成形体を2個作製した。得られた成形体を上述した一般工程に従って処理し2個の単結晶引き上げ用炭素素材るつぼの素材を得た。得られたるつぼの形状は図15に示すとおりである。るつぼの寸法は、内径 $d_1$ が760mm、外径 $d_2$ が785mm、内部深さ $h_1$ が460mm、高さ $h_2$ が465mm、内周面曲率半径 $R_1$ が750mm、外周面曲率半径 $R_2$ が780mm、直胴部に近い内周面R部の曲率半径 $R_3$ が150mm、R部の外周面曲率半径 $R_4$ が160mmであった。1個のるつぼ素材より上述したように試料を採取し、嵩密度および曲げ強度を測定した。他方のるつぼ素材に機械加工を施して、単結晶引き上げ用炭素素材るつぼ製品を得、シリコン単結晶引き上げ作業に供し、その寿命を評価した。

【0062】〔実施例2〕最初から最後まで炭素繊維のフィラメント数が30000本のストランドを用いる以外は実施例1と同一の方法を用いて単結晶引き上げ用炭素素材るつぼの素材を2個作製した。同様に1個のるつぼ素材について試料を採取し、その嵩密度および曲げ強度を測定した。他方のるつぼ素材に機械加工を施してるつぼ製品を得、シリコン単結晶引き上げ作業に供してその寿命を評価した。

【0063】〔実施例3〕ストランドが直胴部を隙間なく覆うまで16回1周のワインディングとクロスの貼付けを行なう工程を、最初から最後まで2ラウンドとした以外は実施例1と同一の方法でるつぼ素材を作製した。1個のるつぼは上記と同様に物理試験に供し、他方のるつぼ素材に機械加工を施してるつぼ製品を得、シリコン単結晶引き上げ作業に供してその寿命を評価した。

【0064】〔比較例〕炭素繊維ストランドを、底部極点を通る軌道のみでワインディングして成形体を作製しようとしたが、600回のワインディング後は、極点付近でストランドが滑りワインディングを続行することができなかった。このような段階でワインディングを中止し、未完成となった成形体を、上記一般工程に従って高純度化処理まで行ない、得られた素材から試料を採取して高密度および曲げ強度を測定した。

【0065】以上の結果を表1に示す。なお、従来の炭\*

単結晶引き上げ用炭素材るつぼの特性および寿命調査結果

	高密度 (g/cc)	曲げ強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	単結晶引き上げ回数(回)	備 考
実施例1	1.5	1000	120	
実施例2	1.3	800	100	るつぼ外表面の凹凸は比較的大
実施例3	1.2	500	100	るつぼ外表面の凹凸が比較的大
比較例	0.8	200	×	

【0067】上記実施例では、16回一周のワインディングを行なったが、一周を何回のワインディングで行なうかは、るつぼのサイズ、形状等に応じて適宜変更することができる。また、内接円の直径、クロスのサイズ、クロスの貼付け位置、ストランドのフィラメント数、その変更のタイミング、工程のラウンド数、その変更のタイミング等の種々の条件も、適宜変更していくことが可能である。

【0068】

【発明の効果】本発明によれば、軽量で、強度が高く、製作が容易でありかつ寿命の長い単結晶引き上げ用るつぼを提供することができる。本発明によるるつぼは、その全体が高い強度を有する炭素繊維強化炭素材からなるものであり、従来よりも応力の作用に耐え、溶融材料蒸気による反応生成物の剥離の問題が少なく、より長い寿命を有している。上述したような本発明の製造方法により、上述したような優れた特性を有する実用的なるつぼを提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】単結晶引き上げ装置の一例を示す模式図である。

【図2】本発明によるるつぼの各部分を説明するための模式図である。

【図3】極点を通るローラー巻きを示す図である。

【図4】直胴部に適用されるフープ巻きを示す模式図である。

【図5】本発明において、丸底部を構成すべき炭素繊維が中心軸から所定の距離だけ離れてローラー巻きされる様子を示す図である。

【図6】図5よりも中心軸からの距離が大きな状態で炭素

\* 素繊維を用いない3分割型黒鉛るつぼの高密度は約1.8 g/cc、曲げ強度は約400 kg/cm、使用可能な単結晶引き上げ回数は約60回であった。比較から明らかなように、本発明によるるつぼは、従来の黒鉛からなるるつぼより高密度が小さく、したがって軽量のるつぼとなっている一方、より高い曲げ強度を有し、さらに単結晶引き上げについて寿命のより長いものであった。

【0066】

【表1】

※素繊維がローラー巻きされる様子を示す図である。

【図7】丸底部に炭素繊維クロスを貼付ける工程を説明するための底面図である。

【図8】図7よりもサイズの大きな炭素繊維クロスを丸底部に貼付ける工程を説明するための底面図である。

【図9】本発明において、丸底部と直胴部との境界領域に炭素繊維クロスを貼付ける工程を説明するための側面図である。

【図10】貼付けられる炭素繊維クロスの一例を示す側面図である。

【図11】実施例において得られるるつぼ素材から試験片が採取される位置を示す模式図である。

【図12】実施例1において最初に炭素繊維ストランドがローラー巻きされる様子を示す底面図である。

【図13】実施例1において炭素繊維クロスが貼付けられる様子を示す側面図である。

【図14】炭素繊維がワインディングされる軌道のそれぞれの領域を示す模式図である。

【図15】実施例において得られるるつぼの形状を示す概略断面図である。

【符号の説明】

10a 石英るつぼ

10b 炭素材るつぼ

20 るつぼ

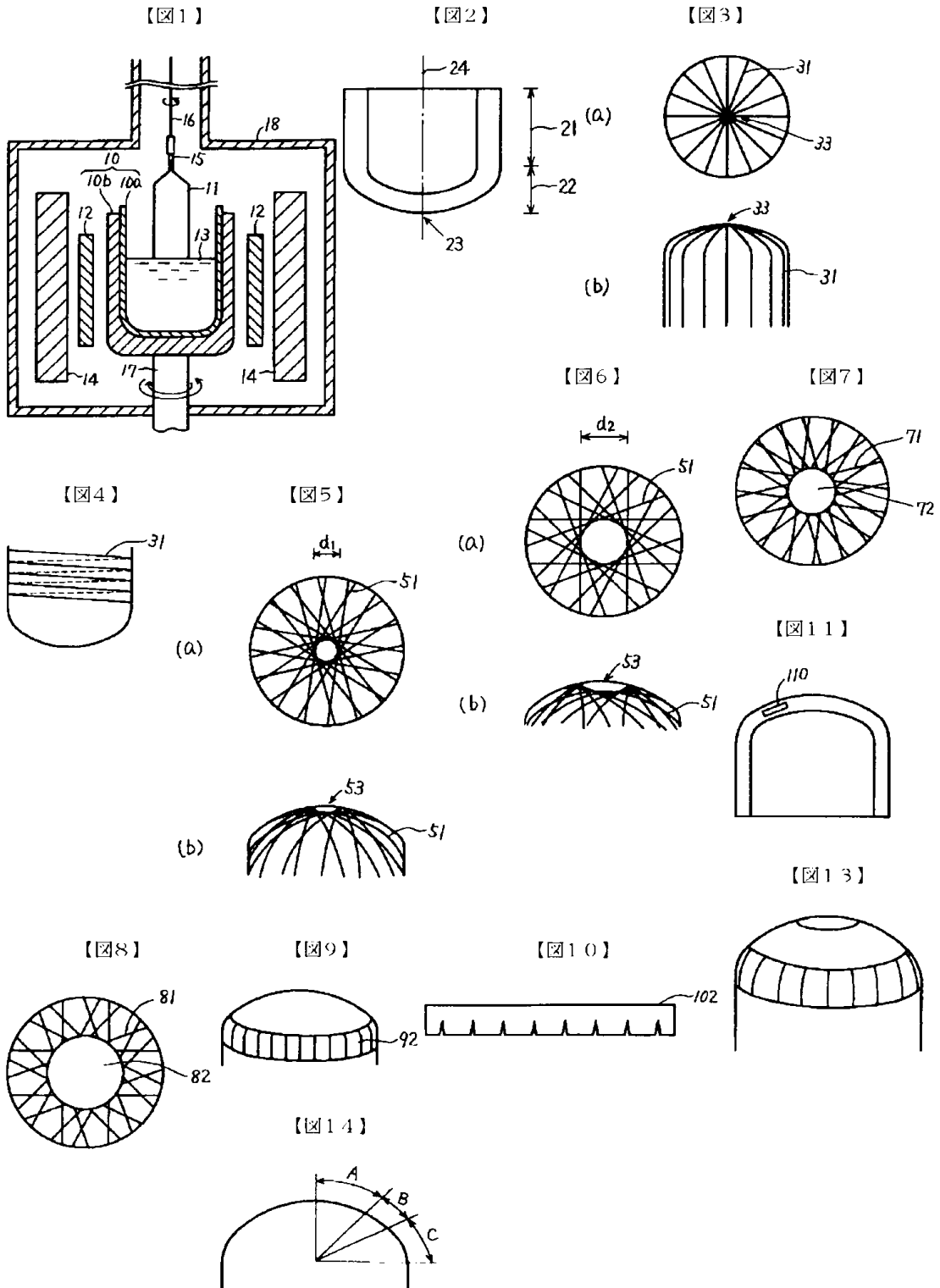
21 直胴部

22 丸底部

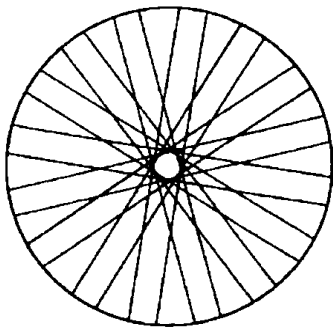
23 極点

24 中心軸

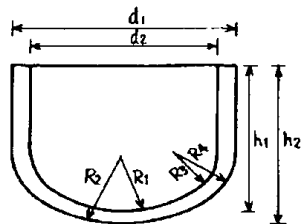
31、51、71、81 炭素繊維



【図12】



【図15】



\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] this invention relates to the crucible used in order to support the crucible which holds melting material directly in the equipment which pulls up single crystals, such as a semiconductor material, with the Czochralski method especially about the crucible for single crystal raising which consists of carbon fiber strengthening carbon material, and its manufacture method, and its manufacture method.

[0002]

[Description of the Prior Art] Although there are various methods in a crystal-growth method, it is carried out in equipment as the Czochralski method represented by the Czochralski method as one mentioned, for example, shown in drawing 1.

[0003] In the crystal raising equipment shown in drawing 1, the crucible 10 for crystal raising for holding a raw material melt to the core is arranged in a chamber 18. The side attachment wall on which, as for the crucible 10 for crystal raising, a side attachment wall encloses cylinder-like quartz crucible 10a and it consists of cylinder-like carbon material crucible 10b. Quartz crucible 10a has fitted in in carbon material crucible 10b. The heater 12 of a resistance heating formula and the heat insulating mould 14 made from a graphite are arranged in the shape of a concentric circle on the outside of the crucible 10 for crystal raising. The solution 13 of a raw material is held in the crucible 10 for crystal raising. A solution 13 is prepared by fusing the raw material of a predetermined weight at a heater 12. On the medial axis of the crucible 10 for crystal raising, the raising rod 16 which can rotate at predetermined speed is formed in the direction shown by the arrow in drawing, and seed crystal 15 is attached at the nose of cam. The crucible 10 for crystal raising is supported with the crucible support shaft 17 which can rotate to this direction or an opposite direction about the same shaft as the raising rod 16. A single crystal 11 can be grown up by contacting seed crystal 15 on the front face of the prepared solution 13, and rotating a crystal according to the growth, and pulling up up.

[0004] When pulling up the single crystal of semiconductor materials, such as silicon, in equipment which was mentioned above, a carbon material crucible supports from an outside the quartz crucible which became an elevated temperature and was softened. Such a carbon material crucible tends to receive a damage according to various factors which are described below.

[0005] When single crystal raising work is completed and a crucible is cooled, a tensile stress mainly acts on a carbon material crucible at the hoop direction of a crucible. This originates in carbon material having a bigger coefficient of thermal expansion compared with the quartz which constitutes an inside crucible. By the way, this stress damages a carbon material crucible, and shortens the life of a crucible. Moreover, when the semiconductor material which remains at the pars basilaris ossis occipitalis of a quartz crucible after single crystal raising, for example, silicon, is solidified by cooling, volume expands. Stress which the pars basilaris ossis occipitalis of a crucible damages by the way acts with this expansion. The crucible to be used is also major-diameter-sized and these problems are becoming much more remarkable in connection with it as major-diameter-ization of a semiconductor wafer progresses.

[0006] There is a method of dividing and using a crucible for lengthwise as a method of easing the tensile stress which acts on the hoop direction of a carbon material crucible. This method has a fixed effect about relief of a tensile stress. However, the problem of the stress by the expansion which acts when the material which remains at the crucible pars basilaris ossis occipitalis solidifies was not what is fully solved by this method.

[0007] Moreover, a new trouble is arising by dividing a carbon material crucible. It softens and the quartz crucible which held the melting semiconductor material blisters outside with the weight of a semiconductor material, or the self-weight of a crucible. Consequently, each part material of the carbon material crucible which is supporting the quartz crucible tends to fall down outside. Local stress acts on a parting plane in that case. This causes local breakage of a parting plane, and a life fall of a crucible.

[0008] Furthermore, the steam of a fused semiconductor tends to adhere to the parting plane of a carbon material crucible, and it is easy to generate a compound to it. For example, if a fused semiconductor is Si, in a parting plane, it will be easy to generate a SiC compound. Since the coefficients of thermal expansion of this compound and carbon material differ, when cooling a crucible, the portion which the compound generated tends to exfoliate.

[0009] On the other hand, using carbon fiber strengthening carbon material is also proposed as the quality of the material of a carbon material crucible prepared in the outside of a quartz crucible (refer to JP,3-43250,Y, the utility model registration No. 3012299 official report, and JP,9-263482,A). Carbon fiber strengthening carbon material has the large intensity of a grain direction, and may have the intensity which bears the stress to generate. However, by the following reasons, such conventional

technology does not indicate practical technology and has a problem which is described below.

[0010] JP,3-43250,Y indicates the crucible for single crystal raising of the structure which combined the side-attachment-wall portion which consisted of cylinder-like carbon fiber strengthening carbon material, and the plinth portion of the pars basilaris ossis occipitalis which consisted of graphite material. Moreover, the utility model registration No. 3012299 official report constitutes the R section which follows the body section of a crucible from it from a carbon fiber strengthening graphite composite material, and indicates the crucible for silicon-single-crystal raising of the structure which combined it with the pars basilaris ossis occipitalis which consists of graphite material. No these crucibles combine the member which consists of at least two kinds of quality of the materials, and do not use carbon fiber strengthening carbon material for the pars basilaris ossis occipitalis. In these crucibles, the crucible pars basilaris ossis occipitalis which consists of graphite material does not have sufficient intensity to the stress resulting from the expansion at the time of solidification of the material mentioned above. Moreover, the crucible which combined two or more members has the problem that a reaction with the steam of melting material tends to occur in a parting plane as mentioned above, and ablation of a resultant takes place.

[0011] JP,3-43250,Y suggests constituting the whole crucible by carbon fiber strengthening carbon material again. After this official report's twisting the continuation tow of the carbon fiber which sank the initial condensate of furfuryl alcohol into the mandrel of a crucible configuration in the shape of helical one, carrying out forming hardening and removing a mandrel, the method of manufacturing a crucible is indicated by calcinating under an inert atmosphere and carbonizing matrix binding material. However, this official report will not indicate at all whether a practical crucible is obtained, if what winding is performed concretely. It is not easy to, obtain the pars basilaris ossis occipitalis of suitable intensity by such filament winding method as a matter of fact. If the pars basilaris ossis occipitalis formed [ how a pars basilaris ossis occipitalis is formed concretely and ] such again is not having it indicated the intensity of which it has, this contractor cannot manufacture at all the crucible of the carbon fiber strengthening carbon material which has a suitable pars basilaris ossis occipitalis. For example, the utility model registration No. 3012299 official report mentioned above presupposed that it is not necessary to produce the crucible which was united to the pars basilaris ossis occipitalis since it is very difficult to fabricate a crucible pars basilaris ossis occipitalis by carbon fiber strengthening carbon material, the pars basilaris ossis occipitalis and the other portion were prepared separately, and the method of combining it is adopted.

[0012] JP,9-263482,A also indicates constituting the whole crucible from carbon fiber strengthening carbon. This official report indicates the crucible which makes the crucible inside as an example the carbon fiber strengthening carbon material which used the carbon fiber cross layered product or the carbon fiber felt layered product, and is made into the carbon fiber strengthening carbon material which fabricated the crucible outside by the filament winding method. This official report indicates the crucible which combined two or more members which consist of carbon fiber strengthening carbon material as another example again. However, this official report will not be indicated at all about whether the crucible which has suitable intensity is obtained, either, if what process performs a filament winding method concretely. Generally, it is difficult to constitute the crucible pars basilaris ossis occipitalis which has suitable intensity by the filament winding method, and if the concrete conditions for it are not shown, it is very difficult [ it ] for this contractor to manufacture the carbon fiber strengthening carbon material crucible which has desirable intensity by the filament winding method, as mentioned above. Moreover, if a crucible is divided into two or more members, a problem which was mentioned above will arise.

[0013] The crucible which consists of carbon fiber strengthening carbon material is expected as what can respond to enlargement of a crucible, and various proposals are made as mentioned above. however, the conventional technology does not offer technology useful about the structure and its manufacture method of a very practical jar The conventional technology is not indicating practically manufacture conditions [ what structure and ] the intensity of which is required, and in order to obtain such intensity, are concretely desirable at all. The actual condition is that the proposal of the very practical crucible which fully demonstrated the property of high intensity and carbon fiber strengthening carbon material called lightweight nature, and its manufacture method is not made yet.

[0014]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The purpose of this invention is offering the carbon material crucible which has the intensity or structure stress by the expansion at the time of material solidification, such as a tensile stress generated in the crucible hoop direction mentioned above, being borne.

[0015] The whole is the crucible which consists of carbon fiber strengthening carbon material, and the further purpose of this invention is offering what has sufficient intensity and can be manufactured easily lightweight.

[0016] The further purpose of this invention is offering the practical structure and the manufacture method of a crucible which consist of carbon fiber strengthening carbon material.

[0017]

[Means for Solving the Problem] The crucible by this invention is a carbon fiber strengthening carbon material crucible for single crystal raising which has the body section really connected with the round-head pars basilaris ossis occipitalis which has the pole at the center, and it indivisible. The material organization for which the whole has the organization of the carbon fiber strengthening carbon material formed of the filament winding method, and constitutes this round-head pars basilaris ossis occipitalis Have the laminated structure of the carbon fiber arranged by the filament winding method, and to the laminated structure of the carbon fiber in this round-head pars basilaris ossis occipitalis The carbon fiber strengthening carbon material which the carbon fiber which passes along the orbit which is separated from a medial axis in various distance, respectively is intermingled, and constitutes a crucible is bulk density 1.0g [/cc ] or more and 300 kg/cm<sup>2</sup>. It is characterized by having the above flexural strength. The carbon fiber strengthening carbon material which constitutes the round-head pars

basilaris ossis occipitalis of a crucible especially is bulk density 1.0g [cc] or more and 300 kg/cm<sup>2</sup>. It is desirable to have the above flexural strength.

[0018] In the crucible by this invention, the carbon fiber which passes along the orbit which is separated from a medial axis in various distance, respectively can form the laminated structure of the carbon fiber annularly arranged around a medial axis, and the distance between a medial axis and the carbon fiber arranged annular can change gradually to the radius of the body section, or its near in this laminated structure. Although it originally is not limited, an annular configuration has desirable polygon or round shape of eight or more square shapes, if the homogeneity of the thickness of the jar which gets when the winding of the filament of a carbon fiber is carried out, surface irregularity, and the ease of carrying out of a winding are taken into consideration. However, there is little number of times of a winding, and when it is not necessary to take into consideration about the homogeneity of thickness etc., even if it is the polygon and ellipse form from three square shapes to seven square shapes, it does not interfere.

[0019] In the crucible by this invention, it is desirable to use a carbon fiber cross for the boundary portion of a round-head bottom and/or a round-head bottom, and the body section.

[0020] In the crucible by this invention, the body section can contain the carbon fiber arranged in the horizontally almost perpendicular direction and/or the direction which received horizontally and was leaned at an angle of predetermined of a crucible, and the carbon fiber arranged in the horizontal almost parallel direction.

[0021] The whole is the crucible of one apparatus which consisted of carbon fiber strengthening carbon material, and the crucible by this invention can fully demonstrate the feature of high intensity and lightweight nature. By constituting a crucible from carbon fiber strengthening carbon material which has structure, bulk density, and flexural strength which were mentioned above, this invention person could fully demonstrate the feature of high intensity and lightweight nature, and has found out that the crucible suitable for practical use can be offered.

[0022] Especially this invention person found out that the crucible pars basilaris ossis occipitalis which has suitable intensity could be constituted by devising the winding method of a carbon fiber filament. Namely, the manufacture method by this invention is set to the method of manufacturing the carbon fiber strengthening carbon material crucible for single crystal raising which has the body section really connected with the round-head pars basilaris ossis occipitalis which has the pole at the center, and it indivisible using a filament winding method. It faces rolling on a mandrel the carbon fiber to which binding material was made to adhere, and piling up, and is characterized by having the process which keeps away gradually the orbit of the carbon fiber which should constitute a round-head pars basilaris ossis occipitalis from the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole or its near.

[0023] It is desirable to increase gradually the carbon fiber by which the distance from the medial axis which passes along the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole is rolled on the same orbit as the distance between this orbit and this pars-basilaris-ossis-occipitalis pole becomes large in the process which keeps away gradually the orbit of the carbon fiber which should constitute a round-head pars basilaris ossis occipitalis from a manufacture method by this invention from the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole or its near.

[0024] Moreover, in the process which keeps away gradually the orbit of the carbon fiber which should constitute a round-head pars basilaris ossis occipitalis from a manufacture method by this invention, using the strand which consists of two or more filaments as a carbon fiber from the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole or its near, it is desirable to use more strands of the number of filaments as the distance between this orbit and this pars-basilaris-ossis-occipitalis pole becomes large.

[0025] Furthermore, since the thickness of the Plastic solid obtained in the manufacture method by this invention is adjusted, the process which sticks a carbon fiber cross can be used for the portion which should constitute the border area of the portion and/or round-head pars basilaris ossis occipitalis which should constitute a round-head pars basilaris ossis occipitalis, and the body section.

[0026]

[Embodiments of the Invention] Each portion of the crucible by this invention can be defined as follows. The body section 21 is [ in / a crucible 20 / with reference to drawing 2 ] a portion which is making the cylinder-like configuration mostly including the upper limit of a crucible 20. The round-head pars basilaris ossis occipitalis 22 is really connected with the body section 21 indivisible, and plugs up opening in the end of the body section 21. The front face of the round-head pars basilaris ossis occipitalis 22 is making the spherical-surface-like curved surface in general. The pole 23 in the round-head pars basilaris ossis occipitalis 22 points out the intersection of such a curved surface and the medial axis 24 of a crucible, and is the peak of a spherical-surface-like curved surface. The body section 21 and the round-head pars basilaris ossis occipitalis 22 are constituted by the material which the crucible 20 by this invention follows.

[0027] There are mainly the following two methods among the methods of generally manufacturing the crucible which consists of carbon fiber strengthening carbon material.

[0028] (1) After the strand which bundled the filament-winding-method usual carbon fiber filament is immersed in the binding material of hypoviscosity which consists of thermosetting resin, a solvent, etc., twist the strand to which binding material adhered around the mandrel which has a crucible configuration, and fabricate in a required crucible configuration. Then, it is the Plastic solid obtained after performing heat curing at the temperature of 100-300 degrees C and removing a mandrel N2 It carbonizes at the temperature of about 1000 degrees C in inert gas, such as gas. Phenol resin, a tar pitch, etc. are infiltrated after carbonization if needed, it heats at the temperature of 1500 degrees C or more, and graphitization is performed. The crucible obtained according to the graphitization process is usually heated in temperature of 1500 to 2500

degrees C, high grade-ized processing is performed, and the crucible which consists of carbon fiber strengthening carbon material is obtained.

[0029] (2) Obtain the crucible which performs heat curing, carbonization, graphitization, and high grade-ized processing like a filament winding method, and consists of carbon fiber strengthening carbon material after sticking a hand-lay-up-method carbon fiber cross on a crucible type and producing a Plastic solid.

[0030] In order that it is easy to control the intensity of a crucible, and the price of a hand lay up method of a carbon fiber cross may be high and it may generally make a manufacturing cost high by controlling the direction of a carbon fiber by the filament winding method, in this invention, a filament winding method is mainly used. However, if a hand lay up method is used by this invention if needed, control of the thickness of a Plastic solid becomes easy and the crucible which has more desirable organization and more desirable intensity can be obtained.

[0031] There are a Poral volume method and a whoop volume method in how to roll the carbon fiber in a filament winding method fundamentally. Those typical ways of winding are shown in drawing 3 and drawing 4, respectively. Drawing 3 shows the signs of a Poral volume that the orbit which passes along the pole was taken. It is the bottom plan view showing typically signs that the carbon fiber rolled drawing 3 (a) and it has piled up, from the direction of a bottom, and drawing 3 (b) is the side elevation showing signs that it twists. In such a Poral volume, the carbon fiber 31 all passes along the pole 33 of a pars basilaris ossis occipitalis. By the whoop volume method shown in drawing 4, a carbon fiber 31 is wound around an almost perpendicular direction (direction almost parallel to the horizontal direction of a crucible), i.e., a longitudinal direction, to the medial axis of a mandrel.

[0032] Now, in a Poral volume as shown in drawing 3, the thickness of the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole or its near becomes large, and the thickness becomes small, the portion, i.e., the portion of the low LAT, which is distant from there. That is, the more it becomes the pole closely, the lap of a carbon fiber increases and, the more the thickness by it increases (the more it becomes high latitude). (the more) Especially, in the pole and its near, the configuration which rose by the piled-up carbon fiber is made. If the winding is further put on such a portion that rose, a crevice will come be made between the fiber and fiber which carried out the winding, and an opening will come to remain also in the stage which performed graphitization. Such a local increase in thickness and local formation of an opening are not desirable from the configuration of a crucible, and a strong point. Moreover, if it is going to carry out the winding of the carbon fiber to the portion which rose further, the situation where it becomes difficult for slipping of fiber to arise and to continue a winding will also be produced.

[0033] If a winding is performed by such Poral volume method, the thickness of the portion (portion of the low LAT) which the thickness of the crucible per pole increased extremely, and was left, and the body section will become inadequate. If the winding is further piled up in such the state, slipping of fiber, the configuration which rose extremely, and an opening will occur. Therefore, it is difficult to obtain the crucible which has a suitable configuration and suitable intensity only by the Poral volume method which passes along the pole.

[0034] On the other hand, the whoop volume shown in drawing 4 is suitable for giving uniform thickness to the thing of the shape of a cylinder like the crucible body section. However, about the thing of a configuration like a crucible pars basilaris ossis occipitalis, it is not suitable.

[0035] Then, in this invention, the crucible which has a suitable configuration and high intensity is manufactured using the following processes. First, in the filament winding method, face piling up the winding of a carbon fiber, a carbon fiber is made to shift to the orbit which passes along the low LAT from the orbit passing through the pole or its near, and the winding is performed. That is, the orbit of the carbon fiber which should constitute the round-head pars basilaris ossis occipitalis of a crucible is gradually kept away from the pole or its near. Such an example of a way to roll is shown in drawing 5 and drawing 6. Also in which drawing, (a) is a bottom plan view and (b) is a side elevation. In drawing 5, the carbon fiber 51 rolled by the filament winding method is twisted, without passing along the point on the medial axis containing the pole. The carbon fiber 51 twisted that the round-head pars basilaris ossis occipitalis of a crucible should be constituted is a diameter  $d1$  to the pole side. It is arranged in a circle so that an inscribed circle may be made. Therefore, a carbon fiber 51 is rolled in the pars basilaris ossis occipitalis through the orbit which separated only abbreviation  $d1 / 2$  from the medial axis. If such how to wind is performed, it can prevent a pole portion becoming extremely thick. As shown in drawing 5, after performing the winding which passes along the orbit which only a predetermined distance separated from the medial axis, the distance from the medial axis of a winding orbit is changed, and the winding is performed. For example, as shown in drawing 6, the distance from a medial axis shifts to a bigger orbit (orbit which passes along the low LAT), and a winding is performed. In drawing 6, a carbon fiber 51 is arranged in a circle so that the inscribed circle of a diameter  $d2$  ( $d2 > d1$ ) may turn on a pole side. The carbon fiber 51 passes along the orbit which is separated from a medial axis abbreviation  $d2 / 2$ . Thus, making it shift to the orbit which passes along the low LAT from the orbit which passes along high latitude, i.e., by keeping away the orbit of the carbon fiber which should constitute a pars basilaris ossis occipitalis from the pole or its near, it can prevent the thickness of a crucible becoming large locally (setting especially into a pole portion). The distance of the orbit of a carbon fiber and medial axis which should constitute a pars basilaris ossis occipitalis is changeable into various values according to the size and configuration of a crucible which should be manufactured. If many windings are piled up changing this distance gradually, dispersion in thickness can constitute a few crucible pars basilaris ossis occipitalis. Moreover, the crucible pars basilaris ossis occipitalis constituted by making it such comes to have desirable intensity. In addition, although the manufacture method of this invention is equipped with the process which keeps away the orbit of a carbon fiber from the pole or its near gradually as mentioned above at least, it may perform the winding which passes along the pole or its near before such a process and/or in the back. By [ which were mentioned above ] changing the distance from a medial axis in the composition of a crucible pars



basilaris ossis occipitalis like, and carrying out the winding of the carbon fiber, the laminated structure of the carbon fiber in which the carbon fiber which passes along the orbit which is separated from a medial axis in various distance, respectively was intermingled can be formed. Moreover, if the orbit of the carbon fiber which should constitute a pars basilaris ossis occipitalis is moved in a circle, changing the distance from a medial axis gradually as mentioned above, a carbon fiber can form the laminated structure annularly arranged around a medial axis, and the distance between a medial axis and the carbon fiber arranged annular can be gradually changed to the radius of the body section, or its near in such a laminated structure. [0036] Moreover, in the manufacture method of this invention, it is desirable to increase gradually the carbon fiber by which the distance from a medial axis is rolled on the same orbit as a winding is piled up to the orbit which passes along the low LAT from the orbit which passes along the pole or it (i.e., as the orbit of the carbon fiber which constitutes a pars basilaris ossis occipitalis is kept away from the pole or its near). For example, as shown in drawing 5, it is a diameter d1. As shown in drawing 6 rather than the carbon fiber of the arrangement which can do an inscribed circle, it is a diameter d2. The direction with many carbon fibers of the arrangement which can do an inscribed circle is desirable. That is, it faces constituting the round-head pars basilaris ossis occipitalis of a crucible, and it is desirable to increase the number of carbon fibers with which the distance from the pole serves as the same arrangement as the distance between the carbon fibers and the pars-basilaris-ossis-occipitalis poles by which a winding is carried out becomes large. Depending on such how to wind, dispersion in the thickness of a round-head pars basilaris ossis occipitalis is further controllable.

[0037] Furthermore, in this invention, it is desirable to make it shift to a carbon fiber strand with many filaments from a carbon fiber strand with few filaments as a winding is made to shift to the orbit which passes along the low LAT from the orbit which passes the pole or near the pole. For example, it is more desirable than the number of filaments of the carbon fiber used for a winding as shown in drawing 5 that there are more filaments of a carbon fiber used for the winding shown in drawing 6. That is, about the carbon fiber which constitutes a bottom, it is desirable to use more strands of the number of filaments as the distance between the orbit of a winding and the pole becomes large. Dispersion in the thickness of a round-head bottom is further controllable with such a winding.

[0038] Moreover, in this invention, it is desirable to use a carbon fiber cross if needed. A carbon fiber cross makes adjustment of the thickness of a crucible easy. As for especially a carbon fiber cross, it is desirable to use for the border area of a round-head pars basilaris ossis occipitalis and/or a round-head pars basilaris ossis occipitalis, and the body section. These portions are because adjustment of thickness is more difficult than other portions. Attachment of a carbon fiber cross can be suitably performed in one of stages before a winding at least while being after a winding and a winding. As attachment of the carbon fiber cross in a round-head pars basilaris ossis occipitalis is shown in drawing 7 and drawing 8, it can be performed. At the process shown in drawing 7, the carbon fiber cross 72 of a size suitable on the carbon fiber 71 by which the winding was carried out, and a configuration (for example, circle configuration which has a small diameter more suitably than the diameter of a body) is stuck. Such attachment can be easily performed by making binding material adhere to a carbon fiber cross, and putting on a predetermined portion. Furthermore, after performing a winding on the stuck carbon fiber cross, as shown in drawing 8, a bigger (for example, circle configuration which has a bigger diameter) carbon fiber cross can be stuck. According to such a process, the thickness of a round-head pars basilaris ossis occipitalis can be secured, and dispersion in thickness can be controlled. The carbon fiber strengthening carbon material which has the laminating organization which the carbon fiber and the cross repeated in the round-head pars basilaris ossis occipitalis according to such a process can be brought about. The material which has such an organization can have higher intensity.

[0039] Moreover, as shown in drawing 9, pasting \*\*\*\*\* is desirable in the carbon fiber cross of the suitable size for the border area of a round-head pars basilaris ossis occipitalis and the body section, and a configuration. At the process shown in drawing 9, two or more carbon fiber crosses 92 which have a predetermined size are stuck so that it may go around the jar set to the border area of the body section and a round-head pars basilaris ossis occipitalis. Such attachment can be performed by interrupting a winding and sticking two or more carbon fiber crosses at once. Moreover, you may repeat the process which performs a winding, sticking the cross of one sheet or two or more sheets instead of sticking the carbon fiber cross of predetermined number of sheets at once. Moreover, you may stick the carbon fiber cross 102 as shown in drawing 10 on the field between the body section and a round-head pars basilaris ossis occipitalis. This carbon fiber cross has the length which can go around the body section, and lobation is partially prepared so that the round-head pars basilaris ossis occipitalis which became small [ a diameter ] may be met well. Although it is desirable to stick a carbon fiber cross on the border area of a round-head pars basilaris ossis occipitalis and the body section, and a round-head pars basilaris ossis occipitalis as mentioned above, in order to adjust the jar thickness which meets the need, you may stick a carbon fiber cross on other portions.

[0040] In the Poral volume mentioned above, when a carbon fiber passes along the pole, the carbon fiber of the body section is perpendicular to the horizontal direction of a crucible. On the other hand, the carbon fiber which passes along a predetermined distance remote orbit from the pole in a Poral volume leans at an angle of predetermined to the horizontal direction of a crucible. As for the carbon fiber in the body section, it is desirable that the carbon fiber by these Porals volume and the carbon fiber by the whoop volume mentioned above have piled up. The carbon fiber by the whoop volume is rolled between an angle and the almost parallel angle which inclined a little to the horizontal direction of a crucible. The whoop volume of the body section can be performed also in any in front of a Poral volume or after a Poral volume. Moreover, you may perform a Poral volume and a whoop volume by turns. Thus, the body section in which the carbon fiber of a whoop volume and a Poral volume is intermingled has the structure where the laminating of the carbon fiber arranged in the direction leaned at an angle of predetermined to the horizontally almost perpendicular direction and/or this horizontal direction of a crucible and the carbon fiber arranged in the direction almost parallel to this horizontal direction was carried out.

[0041] Especially the kind of carbon fiber used for this invention is not restricted, and any carbon fiber of a PAN system, a rayon system, and a pitch system can be used for it. If the intensity which can be used by the filament winding method is taken into consideration, a PAN system carbon fiber is more desirable. Although especially the diameter of a carbon fiber is not limited, either, if it takes into consideration preventing the fiber piece at the time of a filament winding, the thing more than 2 micrometerphi is desirable. More than the viewpoint which prevents the fiber piece at the time of a filament winding to 1000 / strand of the number of filaments of the carbon fiber strand used are desirable. When climax of the pole and its near is furthermore taken into consideration, the thing of the range of 1000-200000 / strand is desirable.

[0042] Organic binders containing phenol resin, such as thermosetting resin and a pitch, can be used especially for the binding material used for this invention, without being limited.

[0043] The bulk density of the crucible material by this invention which has organization which it was manufactured according to a process which was mentioned above, and was mentioned above is 1.0g/cc or more. SiO<sub>2</sub> generated from melting silicon during raising when raising a silicon single crystal to the opening which the opening increased in the material into which bulk density constitutes a crucible from cc in less than 1.0g /, and was exposed especially to the front face Gas enters. Such gas reacts with carbon material and makes SiC generate. Originating in the difference of the coefficient of thermal expansion between a resultant and carbon material, a resultant exfoliates from carbon material and becomes the factor which reduces the life of a crucible. Although especially the upper limit of bulk density is not limited, considering that the density of a carbon fiber is usually about 1.8g/cc or less, generally the bulk density of the crucible material of this invention is in the or more 1.0 range of 1.7g/cc or less.

[0044] The flexural strength of the carbon fiber strengthening carbon material which constitutes the crucible by this invention is 2kg [ 300 //cm ]. It is above. Such flexural strength is expressed with the intensity when adding a perpendicular load to the direction of the main carbon fibers which usually constitute material. More desirable flexural strength is 400 kg/cm<sup>2</sup>. It is above. The flexural strength of the material which constitutes a crucible is 2kg [ 300 //cm ]. Possibility that breakage will arise that it is the following at the time of cooling after single crystal raising becomes high, and it becomes difficult to obtain a crucible with a more long life.

[0045] In order to offer the practical carbon material crucible which has such intensity and bulk density, this invention uses a process which was mentioned above. In the process which shifts to the orbit which passes along the low LAT, the amount of shift can be adjusted according to the number of the carbon fiber filaments which constitute the number of the circumference which carries out the winding of the same orbit, and a strand from the orbit passing through the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole or its near. For example, it is desirable to move an orbit from a high latitude side to a low LAT side so that the irregularity of the front face of the Plastic solid formed in a winding may be set to 5mm or less. The thickness of a Plastic solid has an equally [ as possible ] desirable bird clapper in the direction of the LAT of a round-head pars basilaris ossis occipitalis. Such a winding is performed, and especially, when the thickness of a Plastic solid is less than the thickness for which the thickness of the portion of the low LAT asks, it can adjust thickness by sticking a carbon fiber cross suitably. Although a winding can be performed on the orbit in a circle which only a predetermined distance separated from the medial axis and distance from a medial axis can be gradually enlarged as mentioned above for example, such a distance can be changed between five stages - 50 stages, corresponding to the size and configuration of a crucible which are formed between 0 - body section diameters. For example, change of such a distance may make only fixed length increase gradually, and may make it increase gradually by the other correspondence.

[0046] In addition, depending on the case, you may also use the process made to shift to the orbit which passes along the pole or its near from the orbit which passes along the low LAT as the winding of a carbon fiber is piled up.

[0047] Moreover, a winding can be performed, making the number of times to which a carbon fiber goes the orbit with the same distance from the pole around increase as it shifts to the orbit which passes along the low LAT from the orbit passing through the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole or its near. If a Poral volume is performed, it will be easy to become for a carbon fiber strand to gather mostly, consequently thicker [ the portion near the pole, i.e. the portion of high latitude, ] than the portion whose direction of the portion of high latitude is the low LAT generally. Even if it becomes the thickness for which the portion of high latitude asks, the thickness of the portion of the low LAT and the portion of the body section circumference may be insufficient. In such a case, the ununiformity of such thickness is cancelable by making the number of the circumference of the winding in the low LAT increase from the thing of high latitude. It is desirable to perform the increase in the number of the winding circumference so that the irregularity on the front face of a Plastic solid obtained, for example may not exceed 5mm. The augend of the number of the circumference can be determined according to the size of the strand of the carbon fiber to be used, the number of the filaments which constitute a strand, etc. By making the number of the circumference increase gradually, the thickness of the portion of high latitude and the portion of the low LAT can become almost equal.

[0048] Furthermore in this invention, it faces shifting to the orbit which passes along the low LAT from the orbit passing through the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole or its near, and can switch to a carbon fiber strand with many filaments from a carbon fiber strand with few filaments. The inclination which runs short of thickness in the portion of the low LAT by such change can be suppressed. The augend of the number of filaments can be set up according to the size of the carbon fiber strand currently used or the number of filaments, the amount of shift from high latitude to the low LAT, the number of the circumference by which the distance from the pole passes along the same orbit. the augend of the number of filaments -- for example, it is desirable to set up so that the irregularity on the front face of a Plastic solid obtained may be set to 5mm or less By making the number of filaments increase gradually, dispersion in crucible thickness can be abolished and the round-head

pars basilaris ossis occipitalis of equal thickness can be formed.

[0049] If the process shown above and the process which sticks a carbon fiber cross are used together, adjusting [ of thickness ] becomes more easy and thickness required for a predetermined portion can be brought about. Especially the method of sticking a carbon fiber cross on the border area of a round-head pars basilaris ossis occipitalis, and the body section and a round-head pars basilaris ossis occipitalis is a realistic and useful method. The 2-D cross and UD cross which were produced by various weaves can be used especially for a carbon fiber cross, without being restricted. Since the plain weave 2-D cross which made the continuation carbon fiber rectangular \*\*\*\*\* especially has little anisotropy, it is desirable. Both a PAN system a rayon system and a pitch system can be used especially for the kind of carbon fiber which constitutes a cross, without being limited. From a strong viewpoint, the cross which consists of a PAN system carbon fiber is used more preferably.

Thickness of the carbon fiber cross to be used can be set to 0.1mm - 1.0mm.

[0050] By using the above manufacturing processes, surface irregularity is small, there are few openings in the interior and a front face, it has comparatively big bulk density, and a carbon material crucible with high intensity can be manufactured relatively. Hereafter, although an example explains this invention to a detail further, this invention is not limited to the following examples.

[0051]

[Example] The PAN system carbon fiber with a [raw material] diameter [ of 7 micrometers ] and a density of 1.77g [/cc ] used beforehand 3000 of three kinds of 6000 commercial carbon fibers bundled 12000, respectively. Every five of these carbon fibers were bundled, three kinds of strands whose numbers of filaments are 15000, 30000, and 60000, respectively were produced, and it was used for the winding.

[0052] As a carbon fiber cross, the thing of marketing which made the PAN system carbon fiber plain weave was used. Both the warp and woof in a cross consisted of 6000 carbon fiber filaments.

[0053] Commercial phenol resin was used as a binding material.

What bundled the [general process] PAN system carbon fiber to five with roving equipment was used as the carbon fiber strand for a winding. The strand was introduced into the immersing tub in filament winding equipment, and phenol resin was made to adhere to a strand in a room temperature. The winding of the strand which made phenol resin adhere to the mandrel corresponding to the crucible configuration was carried out, and it fabricated in the predetermined configuration. The carbon fiber cross was stuck if needed the middle. The obtained Plastic solid was held in 200 degrees C for 3 hours in the atmosphere, and phenol resin was made to heat-harden. It is the Plastic solid which removed the mandrel after heat curing and was obtained N2 It carbonized by holding in 1000 degrees C for 6 hours in gas atmosphere. The Plastic solid which carbonized was made immersed in a phenol resin bath, and the resin was infiltrated. The process of the above-mentioned carbonization and phenol resin sinking in was repeated 3 times. After the last sinking-in process and N2 In 2000 degrees C, it held for 6 hours in gas atmosphere, and graphitization was performed. Subsequently, it held at 2000 degrees C for 6 hours, and high grade-ized processing was performed. The material of the carbon material crucible for single crystal raising was produced according to the above general process.

[0054] The sample for a physical test was extracted in the position as shown in [physical test of material] drawing 11 . The sample 110 was extracted from the round-head pars basilaris ossis occipitalis of a crucible. The extraction position was between the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole and the body section, and was a main position mostly in the crucible thickness direction. The shaft orientations of a sample were directions (radial) which go to the body section from a medial axis. The test piece of 5mmx5mmx50mm size was extracted, and the bulk density and flexural strength were measured. Measurement of flexural strength and bulk density is JIS except having considered size of a test piece as the above. R It applied to the physical-test method of 7222 high-purity-graphite materials correspondingly. That is, flexural strength is JIS. It measured using the bending tester specified to B7733 (compression tester). Repeatedly, after it asked for the volume, it was \*(ed) by the volume which calculated the value of dry weight, and was taken as bulk density, until it measured mass immediately, moved it during the air bath again, it cooled for every hour, and it measured mass and reached constant weight in this, after bulk density maintained the test piece in the 105-110-degree C air bath for 2 hours, cooled this in the desiccator and reached the room temperature.

[0055] In the general process which carried out [example 1] \*\*\*\*, attachment of a winding and a carbon fiber cross as shown below was performed, and the carbon material crucible for single crystal raising was produced.

[0056] First, after performing the winding by the whoop volume about the body section and considering as suitable thickness, as shown in drawing 12 , a winding which carries out the winding of the carbon fiber strand 16 times, and goes around a mandrel pars basilaris ossis occipitalis was performed. The diameter of the inscribed circle which the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole takes the lead, and is produced inside the strand by which the winding was carried out at this time was 30mm. After this winding was completed, the center was stuck for the carbon fiber cross which is 50mmx50mm almost according to the center of an inscribed circle with a diameter of 30mm. Attachment was performed by putting on the back predetermined portion which made binding material adhere to a cross.

[0057] Subsequently, the winding around which it goes by 16 times of windings was performed so that the diameter of the inscribed circle made inside might be set to 60mm. Then, the 80mmx80mm carbon fiber was stuck according to the center of a pars basilaris ossis occipitalis like the above. Furthermore, as shown in drawing 13 , the 250mmx120mm carbon fiber cross was stuck on the border area of a pars basilaris ossis occipitalis and the body section. Attachment put the cross in order uniformly and performed it so that it might go around a mandrel. Next, only the width of face of a strand performed a winding to which the orbit of a winding is shifted to the hoop direction of a pars basilaris ossis occipitalis a little, and is similarly made

as for an inscribed circle with a diameter of 60mm to it. If such a winding is performed, a crevice will hardly be made between up-and-down strands. After performing the winding of 1 round 16 times similarly, the carbon fiber cross of the same size as the above was stuck on the center of a pars basilaris ossis occipitalis, and the border area of a pars basilaris ossis occipitalis and the body section. After performing the winding which shifts some orbits of such a winding and is carried out 1 round 16 times, the process which sticks a carbon fiber cross was repeated until the crevice between the strands in the body section was lost.

[0058] Similarly hereafter, enlarging the diameter of an inscribed circle every 30mm, i.e., while enlarging the diameter of an inscribed circle gradually like 90mm, 120mm, and 150mm-- The carbon fiber cross stuck on a pars basilaris ossis occipitalis enlarges one side every 30mm simultaneously, namely, it enlarges like 110mmx110mm, 140mmx140mm, and 170mmx170mm-- in the stage of each inscribed circle The process of the winding of 1 round and cross attachment was repeated 16 times like the above until the crevice between the strands in the body section was lost. In addition, the size of the cross stuck on the border area of a pars basilaris ossis occipitalis and the body section was set to 250mmx120mm from beginning to end. Thus, work was repeated, making the orbit of a winding shift to the low LAT from high latitude until it repeated a winding and cross attachment and the diameter of an inscribed circle became the almost same value as the diameter of the crucible body section, enlarging the diameter of an inscribed circle.

[0059] However, in the winding mentioned above, the number of filaments of a strand and the number of the circumference of a winding were changed still as follows. In the winding by which the field of A shown in drawing 14, i.e., an inscribed circle, comes among 45 LAT from the pars-basilaris-ossis-occipitalis pole (90 LAT), the number of filaments used 15000 carbon fiber strands. Moreover, in the winding which comes while being 45 - 30 LAT, the fields, i.e., the inscribed circle, of B shown in drawing 14, the number of filaments used 30000 carbon fiber strands. Furthermore, in the winding which comes while inscribed circles are 45 - 30 LAT, the process which repeats with staggering the thing of 1 round to do for a winding and attachment of a cross for the orbit of a carbon fiber 16 times little by little in the stage of the same inscribed circle until a carbon fiber strand covers the body section without a crevice was repeated further once again. that is, \*\*\*\* [ among 45 - 30 LAT / 2 \*\*\*\*\*s ] in the process which was one round among 90 - 45 LAT -- it was divided Subsequently, in the winding which comes while C field shown in drawing 14, i.e., an inscribed circle, is 30 - zero LAT, the number of filaments used 60000 strands. Furthermore, it is 3 round \*\*\*\*\* about the process which sticks the winding of 1 round, and a cross 16 times in the stage of the same inscribed circle in the winding which comes while the LAT of an inscribed circle is 30 - 0 times until a strand covers the body section without a crevice.

[0060] Moreover, the hoop volume performed the winding of a carbon fiber into the portion which runs short of the thickness of the body section, and the whole was made thick [ predetermined ] in the place where the thickness of a bottom became a predetermined value.

[0061] By the above method, attachment of a winding and a cross was repeated and two Plastic solids were produced. It processed according to the general process which mentioned the obtained Plastic solid above, and the material of two carbon material crucibles for single crystal raising was obtained. The configuration of the obtained crucible is as being shown in drawing 15. The size of a crucible is a bore d1. 760mm and outer diameter d2 785mm and the internal depth h1 460mm and height h2 465mm and inner skin radius of curvature R1 750mm and periphery side radius of curvature R2 Radius of curvature R3 of the inner skin R section near 780mm and the body section 150mm and periphery side radius of curvature R4 of the R section It was 160mm. As mentioned above from the jar material which gets one piece, the sample was extracted, and bulk density and flexural strength were measured. It machined for the crucible material of another side, the carbon material crucible product for single crystal raising was obtained, silicon-single-crystal raising work was presented, and the life was evaluated.

[0062] Except that the number of filaments of a carbon fiber used 30000 strands from the [example 2] beginning to the last, two materials of the carbon material crucible for single crystal raising were produced using the same method as an example 1. The sample was extracted about the jar material which gets one piece similarly, and the bulk density and flexural strength were measured. The jar product which has machined for the crucible material of another side was obtained, silicon-single-crystal raising work was presented, and the life was evaluated.

[0063] The crucible material was produced by the same method as an example 1 except having considered the process which sticks the winding of 1 round, and a cross 16 times until a [example 3] strand covers the body section without a crevice as two rounds from the beginning to the last. The physical test was presented with the jar which gets one piece like the above, and it obtained the jar product which has machined for the crucible material of another side, presented silicon-single-crystal raising work with it, and evaluated the life.

[0064] Although the winding of the [example of comparison] carbon fiber strand tended to be carried out only on the orbit which passes along the bottom pole and it was going to produce the Plastic solid, a strand was not able to slide on after 600 times of windings near the pole, and it was not able to continue a winding. The winding was stopped in such a stage, the Plastic solid which became incomplete was performed to high grade-ized processing according to the above-mentioned general process, the sample was extracted from the obtained material, and bulk density and flexural strength were measured.

[0065] The above result is shown in Table 1. In addition, the bulk density of a trichotomized type graphite crucible which does not use the conventional carbon fiber was [ about 400 kg/cm and the usable number of times of single crystal raising of about 1.8g /and flexural strength cc ] about 60 times. While the crucible by this invention had turned into a jar with which bulk density gets lightweight small therefore from the crucible which consists of the conventional graphite, it had higher flexural strength and was the longer thing of a life about single crystal raising further, so that clearly from comparison.

[0066]

[Table 1]

単結晶引き上げ用炭素材るつぽの特性および寿命調査結果

	密度 (g/cc)	曲げ強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	単結晶引き上 げ回数 (回)	備 考
実施例 1	1.5	1000	120	
実施例 2	1.3	800	100	るつぽ外表面の凹凸 は比較的大
実施例 3	1.2	500	100	るつぽ外表面の凹凸 が比較的大
比較例	0.8	200	x	

[0067] In the above-mentioned example, although the winding of a round was performed 16 times, it can be suitably changed according to the size of a crucible, a configuration, etc. by the winding of how many times it goes around. Moreover, various conditions, such as the diameter of an inscribed circle, the size of a cross, an attachment position of a cross, the number of filaments of a strand, timing of the change, the number of rounds of a process, and timing of the change, can also be changed suitably.

[0068]

[Effect of the Invention] According to this invention, it is lightweight, intensity is high and manufacture can offer the easy and long crucible for single crystal raising of a life. The crucible by this invention consists of carbon fiber strengthening carbon material in which the whole has high intensity, and it is equal to an operation of stress conventionally, and there are few problems of exfoliation of the resultant by the melting material steam, and they have the longer life. The practical crucible which has an outstanding property which was mentioned above by the manufacture method of this invention which was mentioned above can be offered.

[Translation done.]